



⑮ **BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND**



**DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT**

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 197 45 773 A 1**

⑤ Int. Cl.⁶
H 01 M 8/04

⑲ Aktenzeichen: 197 45 773.8
⑳ Anmeldetag: 16. 10. 97
㉔ Offenlegungstag: 22. 4. 99

DE 197 45 773 A 1

⑦① Anmelder:
Forschungszentrum Jülich GmbH, 52428 Jülich, DE

⑦② Erfinder:
Busenbender, Ilona, 52064 Aachen, DE; Kels,
Thorsten, 71229 Leonberg, DE

⑤⑤ Entgegenhaltungen:
DE 39 18 190 C2
US 34 94 797 A
EP 01 37 327 A2
WO 92 05 599 A1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ **Brennstoffzelle mit Entgasungseinrichtung**

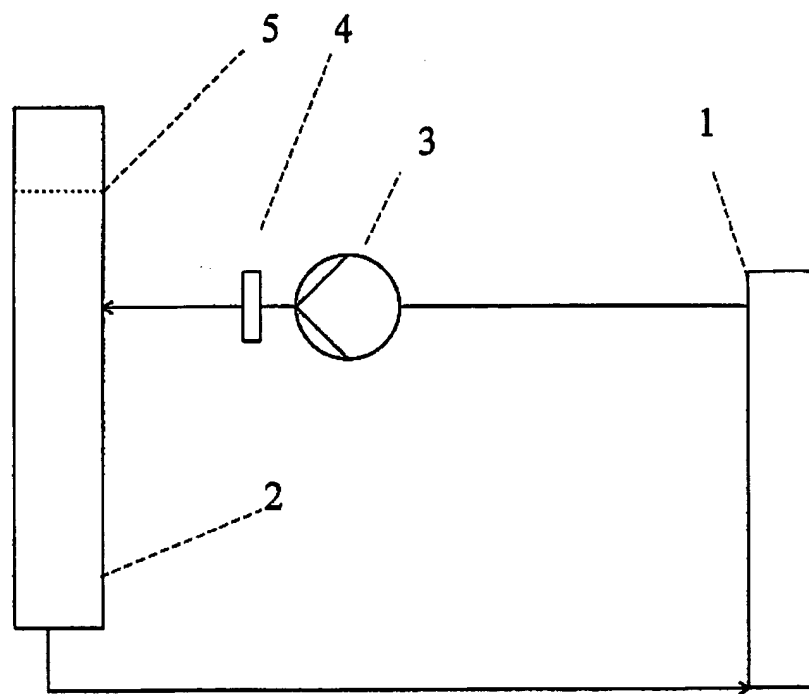
⑤⑦ Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle mit einer Entgasungseinrichtung für den Brennstoff, der der Brennstoffzelle zugeführt wird.

Gase werden aus dem flüssigen Brennstoff herausgelöst und entsorgt.

Gas wird aus einer Flüssigkeit beispielsweise herausgelöst, indem eine unter Druck befindliche Flüssigkeit schlagartig entspannt wird. Flüssigkeiten lösen unter Druck eine große Gasmenge. Bei plötzlicher Entspannung setzen diese Flüssigkeiten die Gase in Form von Bläschen frei. Die schlagartige Entspannung wird beispielsweise mittels einer Düse bewirkt, durch die der Brennstoff hindurchgepumpt wird.

Leistungsvermindernde Effekte, hervorgerufen durch im Brennstoff gelöste Gase, werden so vermieden.

DE 197 45 773 A 1



Figur 1

Beschreibung

Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle sowie ein Verfahren zum Betreiben der Brennstoffzelle.

Eine Brennstoffzelle weist eine Kathode, einen Elektrolyten sowie eine Anode auf. Der Kathode wird ein Oxidationsmittel, z. B. Luft und der Anode wird ein Brennstoff, z. B. Wasserstoff zugeführt.

Verschiedene Brennstoffzellentypen sind bekannt, so beispielsweise die SOFC-Brennstoffzelle aus der Druckschrift DE 44 30 958 C1 sowie die PEM-Brennstoffzelle aus der Druckschrift DE 195 31 852 C1.

Die SOFC-Brennstoffzelle wird auch Hochtemperaturbrennstoffzelle genannt, da ihre Betriebstemperatur bis zu 1000°C beträgt. An der Kathode einer Hochtemperaturbrennstoffzelle bilden sich in Anwesenheit des Oxidationsmittels Sauerstoffionen. Die Sauerstoffionen passieren den Elektrolyten und rekombinieren auf der Anodenseite mit dem vom Brennstoff stammenden Wasserstoff zu Wasser. Mit der Rekombination werden Elektronen freigesetzt und so elektrische Energie erzeugt.

Die Betriebstemperatur einer PEM-Brennstoffzelle liegt bei ca. 80°C. An der Anode einer PEM-Brennstoffzelle bilden sich in Anwesenheit des Brennstoffs mittels eines Katalysators Protonen. Die Protonen passieren den Elektrolyten und verbinden sich auf der Kathodenseite mit dem vom Oxidationsmittel stammenden Sauerstoff zu Wasser. Elektronen werden dabei freigesetzt und elektrische Energie erzeugt.

Mehrere Brennstoffzellen werden in der Regel zur Erzielung großer Leistungen seriell miteinander durch verbindende Elemente zu einem sogenannten Brennstoffzellenstapel verbunden. Ein Beispiel für ein solches verbindendes Element stellt die aus DE 44 10 711 C1 bekannte bipolare Platte dar.

Als Brennstoff kann unter anderem Methan oder Methanol vorgesehen werden. Die genannten Brennstoffe werden durch Reformierung oder Oxidation u. a. in Wasserstoff oder wasserstoffreiches Gas umgewandelt.

Aus der Druckschrift DE 195 19 847 C1 ist bekannt, Brennstoff wie Methan intern, das heißt unmittelbar an der Anode einer SOFC-Brennstoffzelle zu reformieren. Der deutschen Patentanmeldung mit dem amtlichen Aktenzeichen 196 46 354.8-45 ist zu entnehmen, daß Brennstoff wie Methanol an der Anode einer PEM-Brennstoffzelle mittels eines Katalysators wie Platin oxidiert werden kann und so Wasserstoff freigesetzt wird.

Es sind Brennstoffzellen bekannt, die mit einem Tank für Brennstoff verbunden sind. Während des Betriebes befindet sich im Tank flüssiger Brennstoff, also zum Beispiel Methanol. Der Brennstoff wird über Leitungen dem Anodenraum (Raum, in dem sich die Anode befindet) der Brennstoffzelle zugeführt. Durch Reformierung oder Oxidation wird benötigter Wasserstoff freigesetzt. Daneben entstehen Gase wie zum Beispiel CO₂ sowie (in Brennstoffzellen mit protonenleitenden Elektrolyten) Wasser. Ist der Brennstoff überstöchiometrisch der Brennstoffzelle zugeführt worden, so wird der Brennstoff nicht vollständig umgesetzt. Aus dem Anodenraum tritt daher flüssiger Brennstoff aus, in dem produzierte Gase wie CO₂ gelöst sind. Dieser abgereicherte flüssige Brennstoff wird in den Tank über Leitungen zurücktransportiert. Tank, Leitungen und Brennstoffzelle bilden eine Kreislaufführung für den Brennstoff.

Eine innerhalb der Kreislaufführung angeordnete Pumpe sorgt für die Umwälzung des Brennstoffs vom Tank zur Brennstoffzelle und zurück.

Nachteilhaft befinden sich Gase wie CO₂ nach einer Umwälzung im flüssigen Brennstoff. Mit zunehmender Konzentration der gelösten Gase im flüssigen Brennstoff können

Gasbläschen im Brennstoff auftreten. Gasbläschen verstopfen das Porensystem der Anode. Die Leistung der Brennstoffzelle vermindert sich hierdurch.

Aus "Konstantin Ledjeff, Brennstoffzellen, Entwicklung, Technologie, Anwendungen, C. F. Müller-Verlag (1995)" ist bekannt, oberhalb des Tanks einen Kohlendioxidabscheider anzuordnen. Dieser besteht aus einem Behälter, der über eine Leitung mit dem Tank verbunden ist. Tritt Gas aus dem flüssigen Brennstoff aus oder wird nicht im Brennstoff gelöstes Gas in den Tank hineintransportiert, so steigt es empor und gelangt so in den Behälter des Kohlendioxidabscheiders.

Wird der Tank an der Luft, also ohne besondere Schutzgasatmosphäre betankt, so wird der Brennstoff mit Luft und folglich mit Sauerstoff angereichert. Dadurch entsteht in der Brennstoffzelle ein Mischpotential, das die Zellspannung absenkt und dadurch eine Leistungsminderung verursacht.

Es sind aus "J. of power sources, 1995, S. 87-91, vapour feed direct methanol fuel cell with proton exchange membrane electrolyte, A. C. Shukla et al." Vorrichtungen bekannt, die mit Gas betrieben werden und die aus einem Tank, einer Einspritzpumpe, einem Verdampfer, der Brennstoffzelle und einem Kondensator bestehen. Bei diesen Vorrichtungen tritt das im Zusammenhang mit dem gelösten CO₂ genannte Problem zwar nicht auf, da diese Brennstoffzelle mit gasförmigen Brennstoff betrieben werden. Es kann jedoch der mit der Sauerstoffanreicherung verbundene Nachteil auftreten.

Probleme der vorgenannten Art hängen grundsätzlich nicht von einer Kreislaufführung des Brennstoffs ab.

Aufgabe der Erfindung ist die Schaffung einer Vorrichtung der eingangs genannten Art mit verbesserter Leistung im Vergleich zum genannten Stand der Technik. Aufgabe der Erfindung ist ferner die Schaffung eines leistungsfähigen Betriebes einer Brennstoffzelle.

Die Aufgaben werden durch eine anspruchsgemäße Vorrichtung bzw. durch anspruchsgemäße Verfahren gelöst. Vorteilhafte Ausgestaltungen ergeben sich aus den rückbezogenen Ansprüchen.

Neben der eingangs genannten Brennstoffzelle weist die anspruchsgemäße Vorrichtung eine Entgasungseinrichtung für den der Brennstoffzelle zugeleiteten Brennstoff auf. Die Entgasungseinrichtung ist beispielsweise innerhalb einer Kreislaufführung des Brennstoffs angeordnet.

Die anspruchsgemäße Entgasungseinrichtung umfaßt Mittel, die gelöste Gase aus dem flüssigen Brennstoff herauslösen und entsorgen.

Gas wird aus einer Flüssigkeit beispielsweise herausgelöst, indem eine unter Druck befindliche Flüssigkeit schlagartig entspannt wird. Flüssigkeiten lösen unter Druck eine große Gasmenge. Bei plötzlicher Entspannung setzen diese Flüssigkeiten die Gase in Form von Bläschen frei.

Die herausgelösten Gase können zum Beispiel einer Kammer zugeführt und so entsorgt werden. Die Kammer weist zweckmäßigerweise Mittel auf, mit denen sich in der Kammer ansammelndes Gas bei Bedarf abgelassen werden kann.

Die Entgasungseinrichtung ist beispielsweise zwischen dem Tank und der Brennstoffzelle innerhalb der Leitung angeordnet, in der der Brennstoff der Brennstoffzelle zugeführt wird.

Der Brennstoff gelangt in entgaster Form zur Brennstoffzelle. Die im Zusammenhang mit dem Gas (CO₂, O₂) genannten Leistungsverluste werden so vermieden.

In einer Ausgestaltung der anspruchsgemäßen Vorrichtung umfaßt das Mittel, welches gelöstes Gas aus dem Brennstoff herauslöst, eine Düse und eine Pumpe. Die Düse kann in Form einer Verengung einer Leitung ausgestaltet

sein.

Der Brennstoff wird mittels der Pumpe durch die Düse gepumpt. So wird der Brennstoff zunächst unter Druck gesetzt und dann nach Austritt aus der Düse schlagartig entspannt. Als Folge der Entspannung wird Gas aus der Flüssigkeit herausgelöst. Für diesen Prozeß wird nur wenig Energie benötigt. Eine Pumpe wird regelmäßig ohnehin benötigt, um Brennstoff in die Brennstoffzelle zu pumpen. Diesbezüglich ist also kein Mehraufwand erforderlich.

Der entgaste Brennstoff wird der Brennstoffzelle zugeführt.

In einer weiteren Ausgestaltung der Erfindung wird der Brennstoff mit dem herausgelösten Gas einem Behälter über eine (zuführende) Leitung zugeführt. Dieser Behälter ist so angeordnet, daß er nach oben (entgegengesetzt zur Schwerkraft) die zuführende Leitung überragt. Die in den Behälter hineinführende Leitung mündet also seitlich in diesen ein. Das aus dem Brennstoff herausgelöste Gas sammelt sich dann im oberen Teil des Behälters und kann hieraus bei Bedarf über einen geeignet vorgesehenen Auslaß entfernt werden. Der Behälter ist während des Betriebes vorteilhaft stets so mit Brennstoff gefüllt, daß sich der Flüssigkeitspegel stets oberhalb der zuführenden Leitung befindet. So wird verhindert, daß der in den Behälter eingeführte Brennstoff mit dem Gas verwirbelt und sich das Gas wieder löst.

Vorteilhaft ist der Behälter ferner so ausgestaltet, daß der Brennstoff im Behälter nach unten entgegengesetzt zur Schwerkraft weitergeleitet wird. So wird sichergestellt, daß das herausgelöste Gas im Behälter genügend lange verweilt, emporsteigt und so abgetrennt wird.

Vom Behälter wird der Brennstoff dann der Brennstoffzelle zugeleitet.

Vorteilhaft stellt der vorgenannte Behälter zugleich einen Tank für den Brennstoff dar. Dieser Aufbau minimiert den apparativen Aufwand.

Insbesondere in mobilen Vorrichtungen, wie zum Beispiel in einem Auto, kann die anspruchsgemäße Brennstoffzelle zusammen mit dem Tank eingesetzt werden.

Von der anspruchsgemäßen Entgasungseinrichtung ist der bekannte CO₂-Abscheider zu unterscheiden. Der CO₂-Abscheider umfaßt nämlich kein Mittel, mit dem gelöstes Gas aus dem Brennstoff herausgelöst wird.

Fig. 1 zeigt eine Brennstoffzelle 1, die über pfeilförmig dargestellte Leitungen mit einer Pumpe 3, einer Düse 4 und einem Tank 2 verbunden ist. Der Tank 2 überragt nach oben (entgegengesetzt zur Schwerkraft) die entsprechende Zuleitung. Während des Betriebes ist darauf zu achten, daß der Tank stets mit Brennstoff bis zur Füllstandshöhe 5 gefüllt ist. Die Füllstandshöhe 5 befindet sich oberhalb der pfeilförmig dargestellten Leitung, die von der Düse 4 in den Tank hineinführt. Die Leitung, die von der Düse 4 in den Tank hineinführt, mündet seitlich in den Tank ein. Innerhalb des Tanks, der insbesondere länglich ausgestaltet ist, wird der Brennstoff nach unten abgeleitet und gelangt so weiter zur Brennstoffzelle 1. Unter länglicher Ausgestaltung ist zu verstehen, daß der Tank mehrfach hoch als breit oder tief ist.

Neuer Brennstoff kann über eine Zuleitung in die Leitung hinein erfolgen, die von der Brennstoffzelle 1 zur Pumpe 3 führt. So wird sichergestellt, daß neu zugeführter Brennstoff entgast wird, bevor dieser in die Brennstoffzelle 1 gelangt.

Bei der in der Fig. 1 gezeigten Vorrichtung stellen Pumpe 3, Düse 4 und die besondere Ausgestaltung des Tanks 2 die anspruchsgemäße Entgasungseinrichtung dar.

Brennstoff sowie mit einer verbindenden Leitung, über die der Brennstoff von der Entgasungseinrichtung zur Brennstoffzelle geleitet wird.

2. Brennstoffzelle nach vorhergehendem Anspruch mit einer Pumpe (3) und einer Düse (4) als Teil der Entgasungseinrichtung.

3. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche

a) mit einem Behälter (2),

b) der Behälter (2) ist innerhalb der verbindenden Leitung zwischen der Düse (4) und der Brennstoffzelle (1) derart angeordnet, daß der Brennstoff im Behälter (2) in Richtung der Schwerkraft strömt,

c) der von der Düse (4) zum Behälter führende Teil der verbindenden Leitung mündet seitlich in den Behälter (2) ein.

4. Verfahren zum Betreiben einer Brennstoffzelle mit folgenden Schritten:

a) im flüssigen Brennstoff befindliches Gas wird herausgelöst,

b) der flüssige Brennstoff mit dem herausgelösten Gas wird in einem Behälter in Richtung der Schwerkraft geleitet,

c) der im Behälter in Richtung der Schwerkraft geleitete Brennstoff wird zur Brennstoffzelle weitergeleitet.

5. Verfahren zum Betreiben einer Brennstoffzelle, insbesondere nach vorhergehendem Anspruch, mit folgenden Schritten:

a) im flüssigen Brennstoff befindliches Gas wird herausgelöst,

b) der flüssige Brennstoff mit dem herausgelösten Gas wird einem Behälter zugeleitet,

c) die Zuleitung des flüssigen Brennstoffs mit dem herausgelösten Gas zum Behälter erfolgt unterhalb des Flüssigkeitspegels der im Behälter befindlichen Flüssigkeit,

d) der in den Behälter hineingeleitete Brennstoff wird vom Behälter zur Brennstoffzelle weitergeleitet.

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

1. Brennstoffzelle mit einer Entgasungseinrichtung (2, 3, 4) für den der Brennstoffzelle (1) zugeführten

DE 197 45 773

Fuel cell with degasifying device

A fuel cell (1) has a degasifying device (2-4) for the fuel passed to the cell plus a connecting pipe via which the fuel is passed from the degasifying device to the fuel cell. The cell has a pump (3) and a nozzle (4) as parts of the degasifying device. The cell has a container (2). This is located inside the connecting pipe between the nozzle and the cell so that the fuel in the container flows in the direction of the gravity force. The part of the connecting pipe leading from the nozzle to the container opens out laterally into the container.